

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS



PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

REC'D 17 NOV 2005

PCT

(Kapitel II des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts L1P21WO	WEITERES VORGEHEN siehe Formblatt PCT/IPEA/416	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP2004/007911	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 16.07.2004	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 11.09.2003
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07C68/00		
Anmelder LURGI AG et al		
<p>1. Bei diesem Bericht handelt es sich um den internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, der von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde nach Artikel 35 erstellt wurde und dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt wird.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 6 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p>3. Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; diese umfassen</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> (an den Anmelder und das Internationale Büro gesandt) insgesamt 2 Blätter; dabei handelt es sich um</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Blätter mit der Beschreibung, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit Berichtigungen, denen die Behörde zugestimmt hat (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsvorschriften).</p> <p><input type="checkbox"/> Blätter, die frühere Blätter ersetzen, die aber aus den in Feld Nr. 1, Punkt 4 und im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde eine Änderung enthalten, die über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht.</p> <p>b. <input type="checkbox"/> (nur an das Internationale Büro gesandt) insgesamt (bitte Art und Anzahl der/des elektronischen Datenträger(s) angeben), der/die ein Sequenzprotokoll und/oder die dazugehörigen Tabellen enthält/enthalten, nur in computerlesbarer Form, wie im Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll angegeben (siehe Abschnitt 802 der Verwaltungsvorschriften).</p>		
<p>4. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. I Grundlage des Bescheids</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. II Priorität</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. III Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. IV Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der Internationalen Anmeldung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</p>		
Datum der Einreichung des Antrags 19.05.2005	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 18.11.2005	
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt - P.B. 5818 Patentlaan 2 NL-2280 HV Rijswijk - Pays Bas Tel. +31 70 340 - 2040 Tx: 31 651 epo nl Fax: +31 70 340 - 3016	Bevollmächtigter Bediensteter Kardinal, S Tel. +31 70 340-3483 	

Feld Nr. I Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Sprache** beruht der Bericht auf der internationalen Anmeldung in der Sprache, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.
- ☐ Der Bericht beruht auf einer Übersetzung aus der Originalsprache in die folgende Sprache, bei der es sich um die Sprache der Übersetzung handelt, die für folgenden Zweck eingereicht worden ist:
- ☐ internationale Recherche (nach Regeln 12.3 und 23.1 b))
 - ☐ Veröffentlichung der internationalen Anmeldung (nach Regel 12.4)
 - ☐ internationale vorläufige Prüfung (nach Regeln 55.2 und/oder 55.3)
2. Hinsichtlich der **Bestandteile*** der internationalen Anmeldung beruht der Bericht auf (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt*):

Beschreibung, Seiten

1, 2, 4-14 in der ursprünglich eingereichten Fassung
3 eingegangen am 17.12.2004 mit Schreiben vom 16.12.2004

Ansprüche, Nr.

1-5 in der ursprünglich eingereichten Fassung

Zeichnungen, Blätter

1/1 eingegangen am 17.12.2004 mit Schreiben vom 16.12.2004

☐ einem Sequenzprotokoll und/oder etwaigen dazugehörigen Tabellen - siehe Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll

3. ☐ Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:
- ☐ Beschreibung: Seite
 - ☐ Ansprüche: Nr.
 - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
 - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
 - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):
4. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der diesem Bericht beigelegten und nachstehend aufgelisteten Änderungen erstellt worden, da diese aus den im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2 c)).
- ☐ Beschreibung: Seite
 - ☐ Ansprüche: Nr.
 - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
 - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
 - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):

* Wenn Punkt 4 zutrifft, können einige oder alle dieser Blätter mit der Bemerkung "ersetzt" versehen werden.

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT
ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT**

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2004/007911

Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35 (2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung
Neuheit (N) Ja: Ansprüche 1-5
Nein: Ansprüche
Erfinderische Tätigkeit (IS) Ja: Ansprüche 1-5
Nein: Ansprüche
Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) Ja: Ansprüche: 1-5
Nein: Ansprüche:

2. Unterlagen und Erklärungen (Regel 70.7):
siehe Beiblatt

Zu Punkt V.

1. Im vorliegenden Bescheid wird auf folgende Dokumente verwiesen:

D1 : EP 0 638 541 A (MITSUBISHI GAS CHEMICAL CO) 15. Februar 1995
(in der Anmeldung als US5489702 erwähnt)

D2 : EP 0 041 622 A (BASF AG) 16. Dezember 1981
(in der Anmeldung als USUS4436668 erwähnt)

D3 : EP 0 866 051 A (MITSUBISHI GAS CHEMICAL CO) 23. September 1998

D4 : EP 0 478 073 A (UNION CARBIDE CHEM PLASTIC) 1. April 1992

2. Neuheit

2.1 Das Dokument D1 zeigt ein Verfahren zur Herstellung von Dialkylcarbonaten aus Harnstoff, in welchem zunächst Harnstoff und ein Glykol bzw. Alkandiol zum cyclischen Carbonat umgesetzt werden, wobei der entstehende Ammoniak durch ein Stripgas oder refluxierendes Diol ausgetrieben wird. In einer zweiten Stufe wird das cyclische Carbonat mit einem Alkanol zu Dialkylcarbonat umgesetzt. Das freiwerdende Glykol bzw. Alkandiol kann in die erste Stufe zurückgeführt werden.

2.2 Das Dokument D2 zeigt ein Verfahren zur Herstellung von Carbonaten aus Harnstoff, in welchem zunächst Harnstoff und ein Alkohol zum Carbamidsäureester umgesetzt werden, welcher in einer zweiten Stufe mit einem Alkohol zum Carbonat reagiert, wobei der entstehende Ammoniak durch ein Stripgas und/oder Alkoholdampf ausgetrieben wird.

2.3 Das Dokument D3 zeigt ein Verfahren zur Herstellung von Dialkylcarbonaten aus Harnstoff und einem Alkanol, in welchem zur Erhöhung der Reaktionstemperatur ohne Drucksteigerung ein hochsiedendes Lösemittel zugegeben wird.

2.4 Das Dokument D4 zeigt die Umsetzung von "CO₂-Synthons" mit Verbindungen die aktiven Wasserstoff enthalten in Gegenwart von bimetallischen Katalysatoren. In zwei Listen von möglichen Edukten (Ansprüche 4, 5) werden Harnstoff als "CO₂-Synthon" und Di- und höhere Glykole als Verbindungen mit aktivem Wasserstoff

genannt.

2.5 Der Gegenstand von Anspruch 1 unterscheidet sich von den bekannten Verfahren zur Herstellung von Carbonaten in D1 bis D4 darin, daß ein Harnstoff oder Carbamat mit einem polymeren Polyalkohol zu einer Carbamate und Carbonate enthaltenden Mischung umgesetzt wird, die in einem zweiten Schritt mit einem Alkohol oder Phenol unter Bildung von deren Carbonaten und Rückbildung des polymeren Polyalkohols reagiert.

Der Gegenstand des Anspruchs 1 und der davon abhängigen Ansprüche 2-5 ist somit neu (Artikel 33 (2) PCT).

3. Erfinderische Tätigkeit

3.1 Das Dokument D1, welches die Herstellung von Dialkylcarbonaten aus Harnstoff über die Stufe eines cyclischen Carbonates beschreibt, kann als nächstliegender Stand der Technik angesehen werden.

Durch die Verwendung von polymeren Polyolen unter Ausbildung eines Zwischenproduktes aus einer Mischung dieser polymeren Polyole und deren Carbonaten und Carbamaten entsprechend der vorliegenden Anmeldung kann die Abtrennung des freiwerdenden Ammoniaks erfolgen, ohne daß gleichzeitig große Mengen an Alkohol oder Glykol ausgetragen werden und im Kreislauf geführt werden müssen.

Die mit der vorliegenden Erfindung zu lösende Problem kann in der Abtrennung von Ammoniak während der Herstellung von Carbonaten aus Harnstoff oder Harnstoffderivaten gesehen werden.

Die in Anspruch 1 der vorliegenden Anmeldung für diese Aufgabe vorgeschlagene Lösung beruht aus den folgenden Gründen auf einer erfinderischen Tätigkeit (Artikel 33(3) PCT) :

Es ist aus dem Stand der Technik (D1 bis D4) weder bekannt noch nahegelegt, die

Herstellung von Carbonaten aus Harnstoff oder Harnstoffderivaten und polymeren Polyolen über die Zwischenstufe der entsprechenden Carbonate bzw. Carbamate durchzuführen, um das gestellte Problem zu lösen. Das Dokument D4 beschreibt zwar in zwei Listen sowohl Harnstoff als oligomere oder polymere Glykole als mögliche Reaktanden einer Umsetzung, doch kann ein Verfahren nach Anspruch 1 aus der Lehre von D4 nicht abgeleitet werden.

3.2 Die Ansprüche 2-5 sind vom Anspruch 1 abhängig und erfüllen damit ebenfalls die Erfordernisse des PCT in bezug auf Neuheit und erfinderische Tätigkeit.

- 5 serten Synthese wurden daher chemische und physikalische Methoden vorgeschlagen, um das entstehende Ammoniak zu entfernen.

Auch eine Fällung des entstehenden Ammoniaks durch BF_3 wurde erfolgreich durchgeführt (US 2,834,799; 1958), ist jedoch angesichts der entstehenden
10 Salzfrachten unwirtschaftlich.

Das Entfernen des Ammoniaks (US 4,436,668; BASF1984) durch Zugabe von inertem Gas in einer zweiten Stufe lieferte bislang nur ungenügende Umsätze und Selektivitäten. Zur Verbesserung des Prozesses wurde eine zweite Stufe
15 mit einem Katalysator-Reaktanden Dialkyl-isozyanat-alkoxyzinn (US 5,565,603; Exxon 1996; US 5,561,094; Exxon 1996) eingesetzt, der durch Methanol in situ hergestellt wird. Als Nachteil ist die Bereitstellung und Aufarbeitung des Katalysator-Reaktanden zu nennen.

20 Eine Alternative zur direkten Synthese ist der Einsatz eines zyklischen Carbonats (US 5,489,702 Mitsubishi Gas Chemical 1996; US 5,349,077; Mitsubishi Gas Chemical 1994). Hier wird in einem ersten Schritt ein Diol mit Harnstoff umgesetzt und ein zyklisches Alkylencarbonat mit 5 bzw. 6 Ringatomen synthetisiert. Im zweiten Prozessschritt wird das Alkylencarbonat mit Methanol umgeestert. Das Diol kann anschließend im Kreislauf gefahren werden.
25

Die bei der Alkoholyse hergestellten Zwischenprodukte müssen anschließend mit Methanol umgeestert werden, um das Dimethylcarbonat als Produkt zu erhalten. Die Umesterung ist eine katalysierte Reaktion. Als heterogene Katalysatoren werden basische Alkali- und Erdalkalimetalle bzw. Oxide eingesetzt. Beispiele für Alkali- oder Erdalkalimetalle in Zeolithen sind in US 6,365,767 der Exxon, Beispiele für Metalloxide sind in US 6,207,850 Mobil Oil genannt. Verfahren zur Umesterung von Ethylen- und Propylencarbonaten mit Alkoholen in Gegenstrom-Festbett-Rohrreaktoren mit homogenen oder heterogenen Katalysatoren
30 (US 5,231,212; Bayer 1993; US 5,359,188; Bayer 1994) sowie ein Verfahrenspatent zur Synthese über Epoxide mit anschließender Umesterung an bifunktionellen Katalysatoren (US 5,218,135; Bayer 1993) sind ebenfalls bereits
35

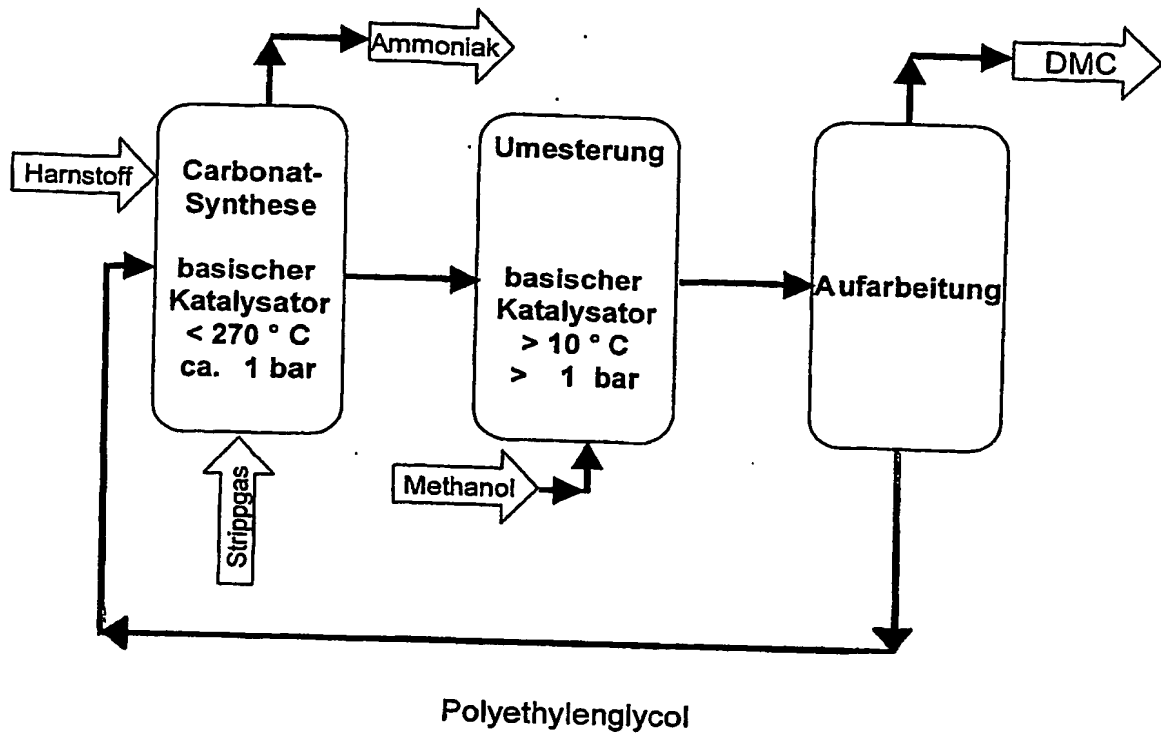


Abb. 1: Beispiel für eine verfahrenstechnische Ausgestaltung des Verfahrens zur Herstellung organischer Carbonate, Beispiel DMC-Herstellung

10